

39681

⑤1

Int. Cl. 3:

B D

①9 BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



DE 29 22 645 A 1

①1

Offenlegungsschrift 29 22 645

②1

Aktenzeichen:

P 29 22 645.7

②2

Anmeldetag:

2. 6. 79

④3

Offenlegungstag:

4. 12. 80

③0

Unionspriorität:

③2 ③3 ③1

⑤4

Bezeichnung:

Gegenstromextraktor

⑦1

Anmelder:

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, 7500 Karlsruhe

⑦2

Erfinder:

Henrich, Edmund, Dipl.-Chem. Dr., 7521 Dettenheim;
Grimm, Reinhard, Dipl.-Chem. Dr., 7514 Eggenstein-Leopoldshafen

DE 29 22 645 A 1

Patentansprüche:

2922645

1. Mehrstufiger Gegenstromextraktor zur Flüssig-Flüssig-Extraktion mit folgenden Merkmalen

- 1) eine den zu extrahierenden Stoff in gelöster Form enthaltende Trägerflüssigkeit (17) und ein flüssiges mit der Trägerflüssigkeit (17) nicht oder nur wenig mischbares Extraktionsmittel (20) werden kontaktiert und dabei durch Einstellen eines Verteilungsgleichgewichtes der zu extrahierende Stoff aus der Trägerflüssigkeit (17) in das Extraktionsmittel (20) überführt,
- 2) zum Beschleunigen der Einstellung eines Verteilungsgleichgewichtes, also des Überganges des zu extrahierenden Stoffes aus der Trägerflüssigkeit (17) in das Extraktionsmittel (20), wird die Austauschfläche (25) zwischen Trägerflüssigkeit (17) und Extraktionsmittel (20) vergrößert,
- 3) zum Erhöhen der Effektivität der Extraktion, also der möglichst vollständigen Überführung des zu extrahierenden Stoffes aus der Trägerflüssigkeit (17) in das Extraktionsmittel (20), wird in mehreren aufeinanderfolgenden Stufen extrahiert,

gekennzeichnet durch folgende Merkmale

- 4) ein Rotor (1) mit vertikaler Achse (6) ist koaxial in einem rohrförmigen Stator (9) angeordnet,
- 5) zwischen dem Stator (9) und dem Rotor (1) besteht ein Ringspalt (12) vorbestimmter Breite,
- 6) zum Einleiten der schweren Phase (17) in den Ringspalt (12) und zum Abführen ist ein erstes Einlaufrohr (18) und ein erstes Auslaufrohr (19) so an den Stator (9) angeschlossen, daß die Strömung in einer axialen ersten Richtung im wesentlichen durch die Schwerkraft (S) bestimmt ist,
- 7) zum Einleiten der leichten Phase (20) in den Ringspalt (12) und zum Abführen desselben ist ein zweites Einlaufrohr (21) und ein zweites Auslaufrohr (22) so an den Stator (9)

angeschlossen, daß die Strömung in einer axialen zweiten Richtung im wesentlichen durch Auftriebskräfte (A) bestimmt ist,

- 8) ein Motor (7) bewegt den Rotor (1) in einer vorbestimmten Drehrichtung (8),
 - 9) der Rotor (1) überträgt auf die im Ringspalt (12) vertikal und einander entgegengesetzt strömenden Flüssigkeitsschichten (23, 24) gleichsinnige Drehbewegungen unterschiedlicher, vom spezifischen Gewicht jeder der Flüssigkeiten abhängigen Drehzahlen (26, 27).
2. Gegenstromextraktor nach Anspruch 1, insbesondere für die Hin- und Rückextraktion von Plutonium und Uran, gekennzeichnet durch folgende Merkmale
- 1) das erste Einlaufrohr (18) zum Einleiten der schweren Phase, z.B. der Trägerflüssigkeit (17) mit dem gelösten Uran und Plutonium, ist im Bereich des oberen Endes des Rotors (1) in Drehrichtung (8) des Rotors (1) zeigend tangential an den Stator (9) angeschlossen,
 - 2) das erste Auslaufrohr (19) zum Abführen der schweren Phase (17) ist am unteren Ende des Stators (9) angeschlossen,
 - 3) das zweite Einlaufrohr (21) zum Einleiten der leichten Phase, z.B. des Extraktionsmittels (20), ist im Bereich des unteren Endes des Rotors (1) in Drehrichtung (8) des Rotors (1) zeigend tangential an den Stator (9) angeschlossen,
 - 4) das zweite Auslaufrohr (22) zum Abführen der leichten Phase (20) ist oberhalb des oberen Endes des Rotors (1) radial an die Wand des Stators (9) angeschlossen.
3. Gegenstromextraktor nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch folgende Merkmale,
- 1) die axiale Länge des Rotors (1) ist kleiner als die des Stators (9),
 - 2) der Rotor (1) ist im Stator (9) so angeordnet, daß der Stator (9) unterhalb und oberhalb des Rotors (1) eine erste und eine zweite Beruhigungszone (10, 11) umschließt,

-3-

- 3) zwischen der ersten und der zweiten Beruhigungszone (10, 11) ist die durch den Ringspalt (12) zwischen Stator (9) und Rotor (1) hohlzylinderförmig ausgebildete Stoffaustauschzone (28) angeordnet, deren aktive Länge etwa dem axialen Abstand zwischen dem ersten Einlaufrohr (18) und dem zweiten Einlaufrohr (21) entspricht und kleiner als die axiale Länge des Rotors (1) ist.
4. Gegenstromextraktor nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch die Merkmale,
- 1) die erste Beruhigungszone (10) und die zweite Beruhigungszone (11) ist durch eine Blende (14) gegen den Rotor (1) und dessen Welle (3) abgeschirmt,
 - 2) die Blende (14) besteht aus einer parallel zur Stirnwand des Rotors (1) angeordneten Scheibe (15) und aus einem die Rotorwelle (3) umschließenden, mit der Scheibe (15) und der Stirnwand des Stators (9) verbundenen Rohr (16),
 - 3) die Scheibe (15) berührt mit ihrem äußeren Rand den Stator (9) und weist im Bereich des Ringspaltes (12) Durchbrüche (15a) auf.
5. Gegenstromextraktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Oberfläche des Rotors (30) und/oder des Stators (32) ringnutzförmige Vertiefungen (31) geringer Tiefe mit stark abgerundeten Kanten aufweist.
6. Gegenstromextraktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Rotor (33) und/oder der Stator (34) leicht kegelförmig ausgebildet sind.

- 4 -

Kernforschungszentrum
Karlsruhe GmbH

Karlsruhe, den 1. Juni 1979
PLA 7923 Hä/wk

- 4 -

2922645

Gegenstromextraktor

- 1 -

030049/0608

Beschreibung:

-5-

Die Erfindung betrifft eine Einrichtung nach dem Oberbegriff des Anspruchs 1. Die Flüssig-Flüssig-Extraktion hat im Bereich der Chemietechnik in den letzten Jahren zunehmende Bedeutung erlangt. Dieses Trennverfahren wird in großem Umfang in großtechnischen Prozessen der chemischen Industrie, der Petrochemie und der Pharmaindustrie eingesetzt. Die Entwicklung ist wesentlich beeinflusst worden durch die Anwendung nuklearer Technologien, welche zur großtechnischen Uransalz-Aufbereitung und zur Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen geführt haben.

Die für die Durchführung der Flüssig-Flüssig-Extraktion erforderlichen Einrichtungen müssen durch besondere konstruktive Maßnahmen an die jeweiligen spezifischen Erfordernisse des Prozesses angepaßt werden, um z.B. den Stoffübergang zu beschleunigen und die Betriebssicherheit und die Verfügbarkeit sowie die Wirtschaftlichkeit zu erhöhen.

Insbesondere bei dem für die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen fast ausnahmslos verwendeten Purex-Prozeß mit Tributylphosphat als Lösungsmittel muß der Extraktor einige zusätzliche Forderungen erfüllen.

Wegen des hohen Spaltstoffgehaltes muß aus Gründen der Kritikalität das Extraktorvolumen so bemessen sein, daß es möglichst ohne Benutzung heterogener oder homogener Neutronengifte kritisch sicher ist. Darüber hinaus sollte eine ferngesteuerte, kontinuierliche Betriebsweise und auch eine ferngesteuerte Reparatur einfach möglich sein.

Die Extraktion muß wegen des erheblichen Materialwertes des Kernbrennstoffes eine hohe quantitative Ausbeute ermöglichen und gleichzeitig wegen der hohen Reinheitsforderungen an das extrahierte Uran und Plutonium gegenüber einer Vielzahl von Spaltprodukten eine hohe Selektivität der Trennung sicherstellen.

Zur Erfüllung dieser Erfordernisse ist ein Zentrifugalextraktor bekannt (KFK-862, April 1969, Seiten 4, 5 und Fig. 1), bei dem die schwere und die leichte Phase in einer Mischkammer mit einem Rührwerk gemischt und über Umlenk- und Beruhigungsbleche durch eine zentrale düsenähnliche Öffnung unter Umwandlung von Druck in Geschwindigkeit von der ruhenden Mischkammer in die rotierende Absetzkammer gefördert wird, in der das Gemisch in einem Fliehkraftfeld von einigen 100 g getrennt wird und die schwere Phase an die Rotorwand und die leichte Phase zur Rotorachse wandert.

Die Nachteile dieses bekannten Extraktortyps bestehen insbesondere darin, daß sehr hohe Drehzahlen erforderlich sind und deshalb Lagerungs- und Unwuchtprobleme auftreten können, daß der mechanische Aufbau relativ kompliziert ist, und daß insbesondere im Bereich der Entmischungszone Verstopfungen durch in beiden Phasen mitgeführte Verunreinigungen auftreten können.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, einen Gegenstromextraktor zu entwickeln, der auch bei der Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen im Purex-Prozeß eingesetzt werden kann, eine Geometrie hoher Kritikalitätssicherheit aufweist, mit wesentlich kleineren Drehzahlen als der bekannte Zentrifugalextraktor arbeitet und der eine hohe Ausbeute der Extraktion und eine hohe Selektivität der Trennung ermöglicht.

Diese Aufgabe wird bei einem Gegenstromextraktor nach dem Oberbegriff des Anspruches 1 durch die in dessen Kennzeichen genannten Merkmale gelöst.

Die mit dem vorgeschlagenen Gegenstromextraktor erzielten Vorteile bestehen insbesondere darin, daß der Betrieb bei kleineren Drehzahlen erfolgt und deshalb Unwuchtprobleme vermieden werden, daß infolge des ringspaltförmigen Querschnittes das Volumen der Stoffaustauschzone und auch der vor- und nachgeschalteten Beruhigungszone so klein ist, daß Kritikalitätsprobleme mit Sicherheit ausgeschlossen sind, daß bei kurzer Verweilzeit der Einsatzstoffe ein hoher Stoffaustausch erreichbar ist, daß Verstopfungen durch die

Ablagerung von Verunreinigungen nicht zu Störungen führen können, und daß die einfache Konstruktion den fernbedienten Austausch von Teilen vereinfacht.

Ein Ausführungsbeispiel der Erfindung ist in der Zeichnung dargestellt und wird im folgenden näher beschrieben. Es zeigen
Fig. 1 schematischer Längshalbschnitt eines Gegenstromextraktors,
Fig. 2 schematischer Querschnitt eines Gegenstromextraktors,
Fig. 3 a bis d schematische Achsschnitte unterschiedlich geformter Rotor-Stator-Anordnungen mit Oberflächenstruktur.

In Fig. 1 ist der Längshalbschnitt eines Gegenstromextraktors mit den im Anspruch 1 genannten Merkmalen vereinfacht dargestellt. Ein Rotor 1 ist über Flanschverbindungen 2 mit einer durchgehenden Welle 3 fest verbunden und in einem Traglager 4 und in einem Stützlager 5 gelagert. Die gemeinsame Achse 6 des Rotors 1 und der Welle 3 ist vertikal angeordnet. Der Rotor 1 wird über die Welle 3 durch einen oberhalb des Stützlagers 5 angeordneten Elektromotor 7 mit einer vorbestimmten Drehzahl und einer vorbestimmten Drehrichtung 8 angetrieben. Der Rotor 1 ist koaxial von einem rohrförmigen Stator 9 umschlossen. In axialer Richtung ist der Stator 9 länger als der Rotor 1, so daß beide Bauelemente eine an das untere Ende des Rotors 1 anschließende erste Beruhigungszone 10 und eine an das obere Ende des Rotors 1 anschließende zweite Beruhigungszone 11 bilden. Zwischen dem Rotor 1 und dem Stator 9 besteht ein Ringspalt 12 vorbestimmter Breite und damit ein hohlzylinderförmiger Raum, der die erste Beruhigungszone 10 mit der zweiten Beruhigungszone 11 verbindet. Die erste Beruhigungszone 10 und die zweite Beruhigungszone 11 ist durch je eine Blende 14 gegen den Rotor 1 und die Welle 3, also gegen die bewegten Teile abgeschirmt. Die Blende 14 besteht aus einer parallel zur Stirnwand des Rotors 1 angeordneten Scheibe 15, die an die Wand des Stators 9 anschließt und im Bereich des Ringspaltes 12 Durchbrüche 15a aufweist und aus einem die Welle 3

des Rotors 1 umschließenden, mit der Scheibe 15 und der Stirnwand des Stators 9 verbundenen Rohr 16.

Zum Einleiten der schweren Phase als Trägerflüssigkeit 17, also z.B. des Tributylphosphats, mit dem gelösten Uran und Plutonium in den Ringspalt 12 ist ein erstes Einlaufrohr 18 im Bereich des oberen Endes des Rotors 1 in Drehrichtung des Rotors 1 zeigend tangential an den Stator 9 angeschlossen.

Zum Abführen der schweren Phase ist ein erstes Auslaufrohr 19 am unteren Ende des Stators 9 radial angeschlossen.

Zum Einleiten des Extraktionsmittels 20, also der leichten Phase, ist ein zweites Einlaufrohr 21 im Bereich des unteren Endes des Rotors 1 in Drehrichtung des Rotors 1 zeigend tangential an dem Stator 9 angeschlossen.

Zum Abführen der leichten Phase 20 ist ein zweites Auslaufrohr 22 oberhalb des oberen Endes des Rotors 1 radial an die Wand des Stators 9 angeschlossen.

Das zweite Einlaufrohr 21 liegt zwar vor der Ebene des gezeichneten Halbschnittes, ist aber zur Verdeutlichung dargestellt.

Die schwere Phase 17 tritt über das erste Einlaufrohr 18 tangential in den Ringspalt 12 ein und bildet eine erste Flüssigkeitsschicht 23 auf der Wand des Stators 9, der hohlzylinderförmig infolge der Schwerkraft S zu der ersten Beruhigungszone 10 fließt und über das erste Auslaufrohr 19 wieder abgeführt wird.

Die durch das zweite Einlaufrohr 21 am unteren Ende des Rotors 1 tangential in Drehrichtung des Rotors 1 eingespeiste leichte Phase bildet eine zweite Flüssigkeitsschicht 24 auf der Wand des Rotors 1, der hohlzylinderförmig infolge der Auftriebskraft A zu der zweiten Beruhigungszone 11 aufsteigt und über das zweite Auslaufrohr 22 wieder abgeführt wird.

Die erste Flüssigkeitsschicht 23 und die zweite Flüssigkeitsschicht 24 bilden also koaxiale Zylinder mit in Richtung der Zylinderachse 6 entgegengesetzter Strömungsrichtung und einer ausgeprägten zylinderförmigen Phasengrenze 25, über die der Stoffaustausch erfolgt.

Der Stoffaustausch wird begünstigt durch den intensiven Kontakt der zylinderförmigen Flüssigkeitsschichten 23, 24 die in Achsrichtung mit gegensätzlichen Strömungsrichtungen aneinander vorbeibewegt werden.

Der Stoffaustausch wird weiterhin verbessert durch eine dieser translatorischen Bewegung überlagerte rotatorische Bewegung der Flüssigkeitsschichten 23, 24. Der Rotor 1 rotiert in Drehrichtung 8 mit einer vorbestimmten Drehzahl. Diese Drehung wird zunächst auf die den Rotor 1 als zweite Flüssigkeitsschicht 24 unmittelbar umschließende leichte Phase übertragen, die mit einer zweiten Drehzahl 26 rotiert. Die Drehung wird auch über die Phasengrenze 25 auf die erste Flüssigkeitsschicht 23 übertragen, die aber infolge ihrer größeren Trägheit mit einer ersten Drehzahl 27 rotiert, die kleiner ist als die zweite Drehzahl 26. Daraus folgt eine rotatorische Relativbewegung zwischen den Flüssigkeitsschichten 23, 24.

Als aktive Länge des Extraktors, in der im wesentlichen ein Stoffaustausch über die Phasengrenze 25 stattfindet, gilt der Bereich zwischen dem ersten Einlaufrohr 18 und dem zweiten Einlaufrohr 21, der die Stoffaustauschzone 28 bildet.

In Fig. 2 ist ein Querschnitt des Gegenstromextraktors oberhalb des ersten Einlaufrohres 18 schematisch dargestellt. In dieser Figur wird insbesondere die Anordnung der Rohrleitungen für das Zu- und Abführen der schweren und der leichten Phase entsprechend den zu Figur 1 gegebenen Erläuterungen verdeutlicht und die rotatorischen Bewegungen 8, 26, 27 des Rotors 1 und der Flüssigkeitsschichten 23, 24 dargestellt.

Das zweite Auslaufrohr 22 für das Extraktionsmittel 20 liegt wie sich aus Figur 1 ergibt, oberhalb der gewählten Schnittebene, ist aber dennoch in Figur 2 gezeichnet.

Die den Stoffaustausch begünstigenden translatorischen und rotatorischen Bewegungen der Trägerflüssigkeit 17 und des Extraktionsmittels 20 sowie deren intensive Kontaktierung bei Ausbildung einer stabilen Phasengrenze 25 zwischen den Einsatzstoffen können unter bestimmten Voraussetzungen weiter verbessert werden durch die Oberflächengestaltung der die Stoffaustauschzone 28 begrenzenden Bauelemente des Extraktors, also insbesondere des Rotors 1 und/oder des Stators 9.

In Fig. 3 a bis d sind vier mögliche Ausführungsformen als stark vereinfachter Achsschnitt dargestellt. Insbesondere zeigen Fig. 3a einen Stator 9 mit einem Rotor 30, dessen Oberfläche ringnutzförmige Vertiefungen 31 mit stark abgerundeten Kanten aufweist,

Fig. 3b einen Rotor 1 mit einem Stator 32, dessen Oberfläche wie die des Rotors 30 in Fig. 3a ausgebildet ist,

Fig. 3c einen Rotor 30 mit einem Stator 32, deren Oberfläche wie erläutert ausgebildet sind,

Fig. 3d einen leicht kegelförmigen Rotor 33, der in einem kegelförmigen Stator 34 angeordnet ist.

Bei einem Ausführungsbeispiel eines Gegenstromextraktors mit den Merkmalen des Anspruches 1 mit einem Rotordurchmesser von 45 mm, einer Ringspaltbreite von 2,5 mm, einer Stoffaustauschzone von 35 cm Länge und einer Drehzahl von 600 U/min wurden bei einer Radialbeschleunigung von etwa 10 g folgende Werte gemessen:

Extraktion:

Einlauf: wäßrige Phase: 0,5 l/h; 1 mol/l HNO₃; 216 g/l Uran
organische Phase: 1,35 l/h, 30 % TBP in Dodecan

Auslauf: wäßrige Phase: 0,3 g/l Uran

Rückextraktion:

- 11 -

Einlauf: wäßrige Phase: 2 l/h; 0,01 mol/l HNO_3

organische Phase: 1 l/h; 80 g/l Uran, 30 % TBP in
Dodecan

Auslauf: organische Phase: 1 g/l Uran

Bezugszeichenliste:

- 22 -

- | | |
|-----------------------------------------------------|------------------------|
| 1 Rotor | 36 Stator |
| 2 Flanschverbindung | 37 Längsnute in 35, 36 |
| 3 Welle | |
| 4 Traglager | |
| 5 Stützlager | S Schwerkraft |
| 6 Achse von 1 und 3 | A Auftriebskraft |
| 7 Elektromotor | |
| 8 Drehrichtung von 1 | |
| 9 Stator | |
| 10 erste Beruhigungszone | |
| 11 zweite Beruhigungszone | |
| 12 Ringspalt | |
| 14 Blende | |
| 15 Scheibe von 14 | |
| 15a Durchbrüche in 14 | |
| 16 Rotor von 14 | |
| 17 Trägerflüssigkeit, schwere Phase | |
| 18 1. Einlaufrohr | |
| 19 1. Auslaufrohr | |
| 20 Extraktionsmittel, leichte Phase | |
| 21 2. Einlaufrohr | |
| 22 2. Auslaufrohr | |
| 23 erste Flüssigkeitsschicht auf 9 (schwere Phase) | |
| 24 zweite Flüssigkeitsschicht auf 1 (leichte Phase) | |
| 25 Phasengrenze zwischen 23 und 24 | |
| 26 2. Drehzahl der leichten Phase | |
| 27 erste Drehzahl der schweren Phase | |
| 28 Stoffaustauschzone | |
| 30 Rotor | |
| 31 Ringnute in 30, 32 | |
| 32 Stator | |
| 33 Rotor, kegelförmig | |
| 34 Stator, kegelförmig | |
| 35 Rotor | |

- 12 -

030049/0608

-13-
Leerseite

Fig. 2

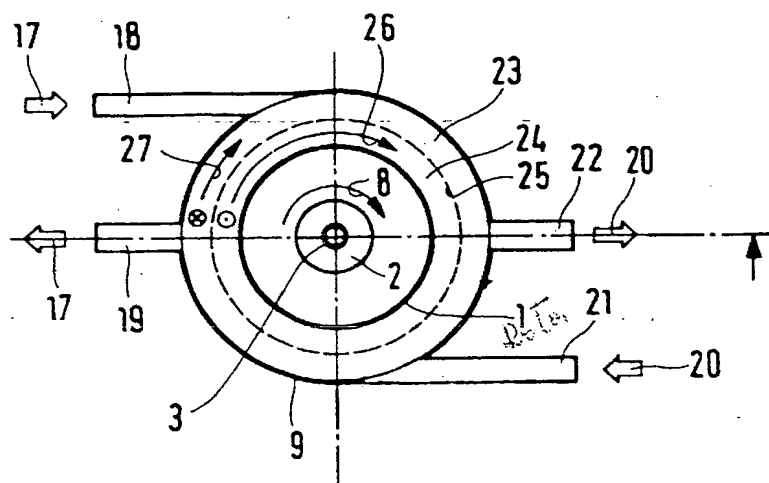
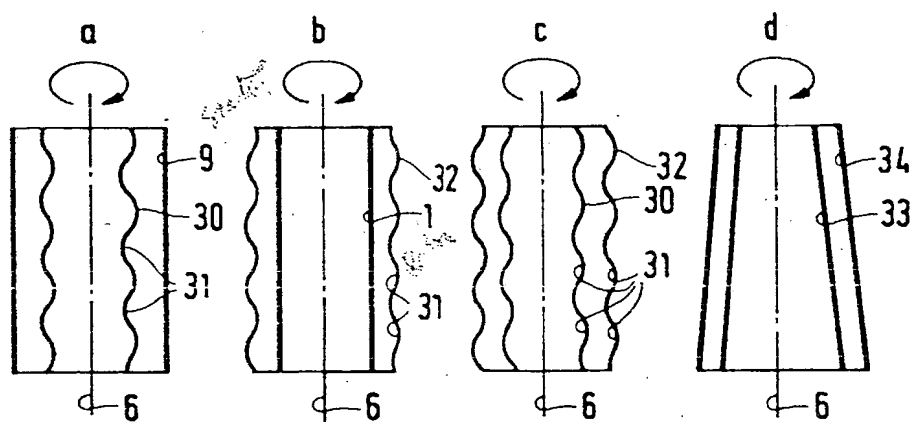


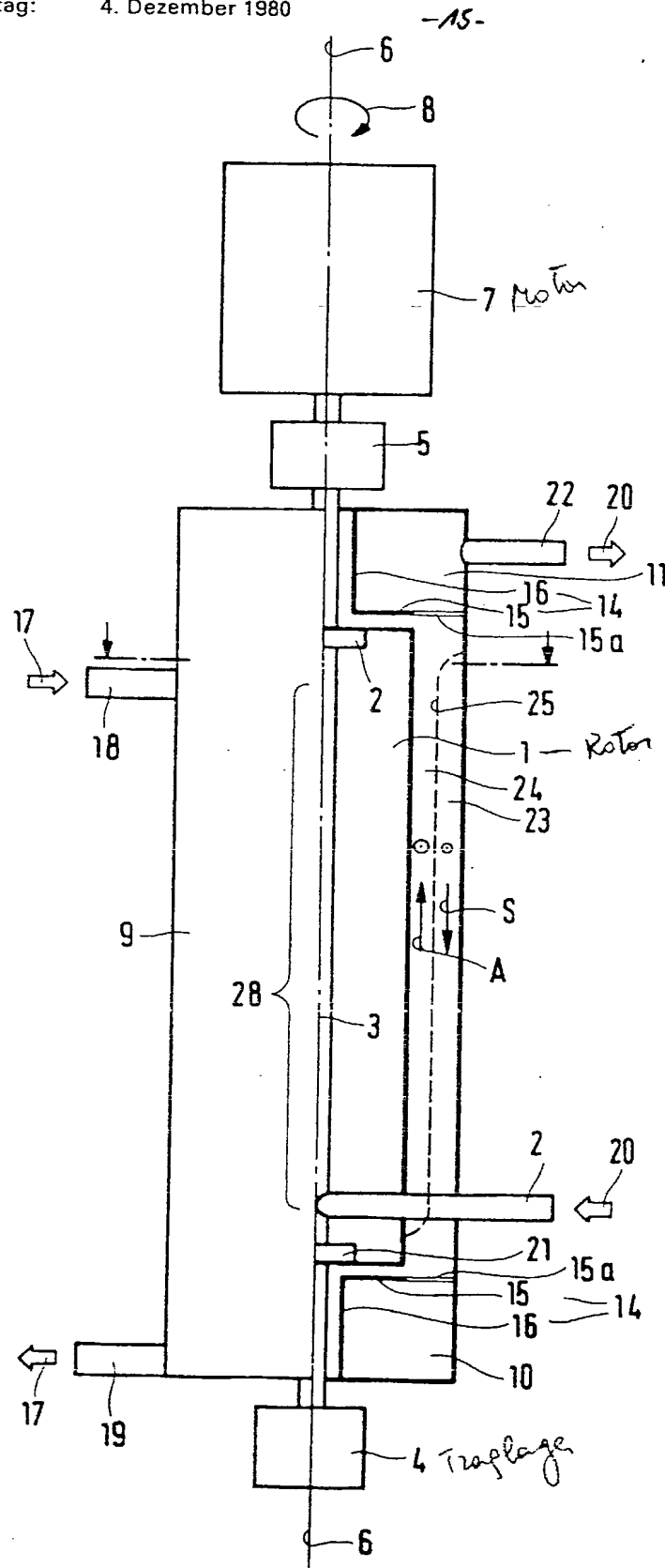
Fig. 3



Nummer: 29 0045
 Int. Cl. 2: B 01 D 11/04
 Anmeldetag: 2. Juni 1979
 Offenlegungstag: 4. Dezember 1980

2922645

Fig. 1



030049/0608